

Эти реакции, за исключением двух последних, экзотермичны и протекают с высокими скоростями даже при комнатной температуре [4, 5]. В двух последних реакциях энергии активации составляют $\sim 80-100$ кДж/моль, что ниже типичных значений реакций нейтральных продуктов при медленном окислении органических веществ. Однако концентрации заряженных частиц в течение периода индукции самовоспламенения малы ($\sim 10^6 - 10^7$ см $^{-3}$ [2]), поэтому для решения вопроса о роли отрицательных ионов в процессах медленного окисления необходимы дальнейшие теоретические и экспериментальные исследования.

Поступила в редакцию 6/VII 1984

ЛИТЕРАТУРА

1. Дж. Лаутон, Ф. Вейнберг. Электрические аспекты горения. М.: Энергия, 1976.
2. Ю. Н. Шебеко, Е. И. Зверев, А. Б. Ильин и др. Хим. физ., 1982, 12, 1721.
3. А. Э. Малиновский. Социалистическая реконструкция и наука, 1935, 7, 29.
4. Ионно-молекулярные реакции в газах. М.: Наука, 1979.
5. М. Мак-Ивен, Л. Филипе. Химия атмосферы. М.: Мир, 1978.

ЭЛЕКТРИЧЕСКОЕ ПОЛЕ ГОРЯЩЕЙ ОДИНОЧНОЙ ЧАСТИЦЫ МАГНИЯ

В. В. Головкин, С. В. Козицкий, А. В. Флорко
(Одесса)

Процессы горения сопровождаются интенсивной ионизацией [4]. Электрические поля, возникающие при этом в газовых смесях, изучались экспериментально [2, 3] и теоретически [4]. Сложная структура электрических полей в предвоспламенительный период и в процессе горения для углеродсодержащих топлив исследовалась авторами [5]. Сопровождающие это ионизационные процессы и влияние на них легкоионизируемых присадок изучались в [6, 7]. Как следует из [8], при горении одиночных частиц магния обнаружено формирование электрических полей, которые могут инициировать дополнительный массоперенос конденсированных продуктов сгорания на поверхность горячей капли. В настоящей работе продолжены исследования электрических полей горящих частиц магния [8] при пониженных давлениях $p = 0,05 \div 1$ атм с целью выяснения механизма их формирования.

Радиальное распределение электрического потенциала исследовали с помощью электростатического зонда. Методика экспериментальных исследований подробно описана в [8]. Частицу магния при пониженных давлениях поджигали с помощью электрической микропечи, экспериментальную установку помещали в вакуумный пост объемом $25 \cdot 10^{-3}$ м 3 . В процессе выгорания магния на поверхность частицы осаждается конденсированная окись, образуя пористую оболочку (условно назовем ее «шубой»). Как показали результаты киносъемки, а также опыты по «замораживанию» горящих частиц магния, между каплей и «шубой» образуется полость.

Характерная кривая распределения электрического потенциала при атмосферном давлении изображена на рис. 1, где по оси абсцисс отложена приведенная координата $\xi = r/r_0$ (r_0 — радиус частицы до воспламенения).

Поскольку частицу в опытах заземляли, то при ее касании потенциал зонда становился равным нулю. Отрицательный потенциал формировался между горячей каплей и «шубой». Абсолютное значение минимума потенциала в этой зоне по мере выгорания капли магния возрастало от $\varphi = -0,05$ до $-0,25$ В. По мере удаления от поверхности капли потенциал проходил через нуль в области «шубы» и достигал максимума

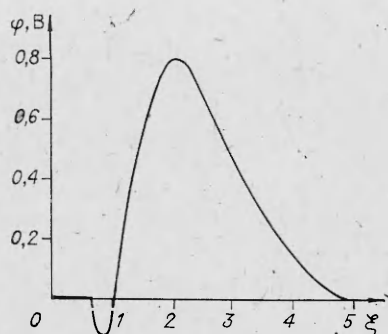


Рис. 1. Радиальное распределение потенциала вокруг горячей одиночной частицы магния при атмосферном давлении.

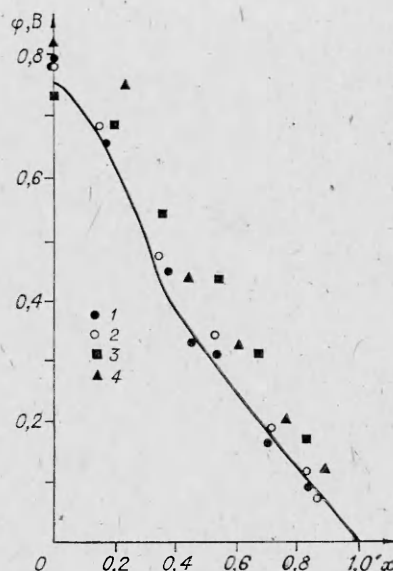


Рис. 2. Распределение электрического потенциала между «шубой» и зоной конденсации.
p, атм: 1 — 1, 2 — 0,5, 3 — 0,2, 4 — 0,05. Линия — расчет.

$\varphi \approx 0,8$ В в зоне внутренней конденсации [9], а затем монотонно убывал до нуля при $\xi = 4 \div 5$. С понижением давления качественный характер распределения потенциала оставался неизменным. Положение и численное значение минимума практически не менялись. Координата максимума смещалась в область больших ξ по закону $P_0^{-1/3}$ (где $P_0 = p/p_{\text{атм}}$ — безразмерное давление); абсолютное значение максимума незначительно возрастало (на 10—15%). Координата нулевого потенциала, наиболее удаленная от частицы, смещалась с уменьшением внешнего давления примерно по тому же закону, что и положение максимума.

Рассмотрим механизм образования заряженных частиц. Начнем с области 1, где $\varphi < 0$. Здесь между частицей и «шубой» температура близка к температуре кипения магния (1450 К). При таких температурах, как показали оценки, термоионизация не эффективна. Поэтому сделано предположение, что заряженные частицы образуются в рассматриваемой области за счет термоэлектронной эмиссии с поверхности капли. Эмиссия электронов приводит к формированию униполярного отрицательного пространственного заряда, что качественно может объяснить формирование распределения потенциала в рассматриваемой области.

Распределение потенциала, создаваемое объемным пространственным зарядом ρ , определяется уравнением Пуассона

$$\Delta \varphi = 1/\epsilon_0 \cdot \rho. \quad (1)$$

Предположим, что область 1 изотермическая и замкнута для электронов, а распределение концентрации электронов описывается формулой Больцмана. В рамках сферической симметрии задачи уравнение (1) принимает вид

$$-\frac{1}{r^2} \frac{d}{dr} \left(r^2 \frac{d\varphi_e}{dr} \right) = \frac{1}{\epsilon_0} n_{01} e^{\frac{e\varphi}{kT}}, \quad (2)$$

где φ_e — потенциал, создаваемый объемным пространственным зарядом; $\varphi = \varphi_e + q/r$ — полный потенциал, в котором второе слагаемое обусловлено наведенным зарядом на частице [10]; n_{01} — концентрация электронов вблизи капли. Выражение (2) не меняет вида, если вместо φ_e подставить φ . Граничные условия выбирали с учетом экспериментальных данных, согласно которым на частице и «шубе» $\varphi = 0$.

Методом конечных разностей нелинейное дифференциальное уравнение (2) сводилось к трансцендентному, которое решалось методом

Зайделя. Решения находили для различных значений концентрации электронов n_0 и отношения радиуса «шубы» $r_{ш}$ к текущему радиусу капли r_k . Результаты расчета показали, что при реальных значениях n_0 распределение потенциала имеет минимум, находящийся приблизительно посередине между «шубой» и по-

верхностью капли. Вычисленные значения минимума потенциала при различных n_0 и $r_{ш}/r_k$ приведены в таблице. Из расчетов следует, что по мере выгорания частицы абсолютное значение минимума потенциала в зоне 1 растет, что согласуется с указанными выше экспериментальными данными. Абсолютная величина потенциала растет и с увеличением n_{01} .

Концентрацию n_0 при горении одиночной частицы магния в области 1 оценивали по значению эмиссионного тока j_e с поверхности горящей капли. Действительно, $j_e = n_0 e v_e$, где v_e — скорость электронов у поверхности частицы. Полагая, что $v_e \sim \sqrt{T_e}$ и оценивая j_e по формуле Ричардсона — Дешмана, получаем $n_{01} \approx 5 \cdot 10^{12} \text{ м}^{-3}$. Следовательно, экспериментальные данные находятся в удовлетворительном количественном согласии с результатами расчета (см. таблицу).

Перейдем к интерпретации результатов эксперимента во второй области — между «шубой» и зоной конденсации. Из рис. 1 видно, что вблизи «шубы» потенциал проходит через нуль и с увеличением ξ растет, достигая максимального значения вблизи зоны конденсации [8], причем для $\xi > 1$ $\phi > 0$. Последнее обстоятельство свидетельствует, что в этой области сосредоточен избыточный положительный объемный заряд с максимальной плотностью вблизи зоны конденсации, где, следовательно, и должны быть наиболее эффективными процессы образования заряженных частиц.

Теоретическая модель формирования распределения электрического потенциала основана на следующих предположениях: 1) заряженные частицы образуются в результате термоэлектронной эмиссии с конденсированных частиц в узкой зоне конденсации; 2) система локально изотермическая; 3) система квазинейтральна; 4) гибель заряженных частиц связана с амбиполярной диффузией, формирующейся из-за существенно различных подвижностей электронов и конденсированных частиц [11]; 5) задача сферически симметричная, стационарная.

С учетом указанных предположений запишем уравнение баланса заряженных частиц [11]

$$-\frac{1}{r^2} \frac{d}{dr} \left[D(r) r^2 \frac{dn}{dr} \right] + Z = 0, \quad (3)$$

где r — текущая координата; $D(r)$ — коэффициент амбиполярной диффузии электронов; Z — скорость образования заряженных частиц в единице объема. Для простоты решения задачи отсчитываем координату от зоны конденсации. Первый член (3) описывает уход частиц за счет амбиполярной диффузии, коэффициент которой является функцией температуры и $D \sim T^{3/2}$. Поскольку задача не очень чувствительна к температурному профилю, последний находился из закона Фурье в предположении постоянства теплового потока из зоны реакции к поверхности капли магния. В этом случае распределение температуры имеет вид

$$T(r) = \left[T_0^{3/2} - \frac{(T_0^{3/2} - T_1^{3/2}) r r_{ш}}{(r_k - r_{ш})(r_k - r)} \right], \quad (4)$$

T_0, T_1 — значения температур в зоне конденсации и вблизи «шубы».

$r_{ш}/r_k$	$\Phi_{\min}$ при $n_0, 1/\text{м}^3$		
	10^{12}	10^{13}	10^{14}
1,5	—0,003	—0,027	—0,1
2,0	—0,01	—0,08	—0,39
4,0	—0,11	—0,31	—0,55

Переходя к безразмерным координатам $x = r/r_k - r_m$, $y = n(r)/n_0$ и представляя $D(x) = \frac{D_0 T_0^{3/2}(x)}{T_0^{3/2}} = D_0 \psi(x)$, получим уравнение (3) в виде

$$\frac{1}{x^2} \frac{d}{dx} \left[\psi(x) x^2 \frac{dy}{dx} \right] + B = 0. \quad (5)$$

Здесь $B = Z(r_k - r_m)/D_0 n_0$; D_0 — коэффициент амбиполярной диффузии, а n_0 — концентрация электронов в зоне конденсации.

Уравнение (5) решали при следующих граничных условиях: $y(0) = 1$ и $y(1) = 0$. Первое условие очевидно, второе означает, что вблизи «шубы» $n_0 = 0$ из-за рекомбинации заряженных частиц. Последнее условие приближенное, и его применение определяется следующим: во-первых, не известен коэффициент отражения заряженных частиц от границы, во-вторых, величины концентрации электронов вблизи зоны конденсации и «шубы» отличаются на несколько порядков. Выражение (5) нелинейно из-за экспоненциальной зависимости Z от x . В связи с этим его интегрировали приближенно. Зависимость скорости образования заряженных частиц от координаты $Z(x)$ аппроксимировали ступенчатой функцией: $Z = Z_0$ при $0 \leq x \leq x_0$ и $Z = 0$ при $x_0 \leq x \leq 1$, где $x_0 = r_0/(r_k - r_m)$; r_0 — ширина зоны конденсации. Поскольку $x_0 \ll 1$ [9], в области $0 \leq x \leq x_0$ коэффициент амбиполярной диффузии считался постоянным и равным D_0 .

Уравнение (5) интегрировали отдельно для областей 1 и 2. Полученные решения сшивались в точке x_0

$$\begin{aligned} y_1 &= 1 - A/6 \cdot x^2, \quad 0 \leq x \leq x_0, \\ y_2 &= C \left[1 - \frac{1}{x} + 0,646a \ln \frac{1-lx}{0,354ax} \right], \quad x_0 \leq x \leq 1, \end{aligned} \quad (6)$$

где

$$\begin{aligned} C &= \frac{x_0}{1,5 - x_0 + ax 0,646 \ln \frac{1-lx_0}{0,354 ax_0}}; \\ A &= \frac{3C}{x_0^3} \frac{1-kx_0}{1-lx_0}; \quad a = r_m/r_k; \quad k = 1-a; \quad l = 1-0,354a. \end{aligned}$$

В решении (6) уже учтено, что $T_1/T_0 \approx 0,5$ [8]. Используя соотношение (6), провели расчет радиальных распределений электронных концентраций для различных значений x_0 . Оказалось, что концентрация электронов резко падает с ростом x . Например, она уменьшается в e раз для $x_0 = 0,05$; $0,1$ и $0,2$ при $x = 0,12$; $0,2$ и $0,39$ соответственно.

Несложно установить связь напряженности электрического поля, возникающего при амбиполярной диффузии, с радиальным распределением концентрации электронов [11]

$$E = - \frac{kT(x)}{e(r_k - r_m)} \frac{d[\ln y(x)]}{dx}. \quad (7)$$

Используя формулы (4), (6) и (7), рассчитывали зависимость $E(x)$ для различных значений x_0 . Затем, применяя связь потенциала с напряженностью электрического поля

$$\varphi(x) = (r_k - r_m) \int_1^x E(Z) dZ, \quad (8)$$

графическим интегрированием находили распределение потенциала $\varphi(x)$, которое представлено на рис. 2. Расчеты показали слабую чувствительность $\varphi(x)$ к величине x_0 и независимость этого распределения в приведенных координатах от внешнего давления. Отметим, что граничное условие $y(1) = 0$ привело к расходимости $E(x)$ вблизи $x = 1$. От нее

избавлялись экстраполяцией $E(x)$ при $x < 0,8$ в область $x > 0,8$. Произвол экстраполяции, как показали оценки, может привести к ошибкам до 10—20%. На рис. 2 видно хорошее согласие экспериментальных и расчетных данных. Таким образом, предложенная модель правильно отражает основные процессы формирования распределения потенциала вокруг горящей одиночной частицы магния.

Обоснуем выбранный механизм ионизационного баланса. Помимо термоэлектронной эмиссии с поверхности конденсированных частиц электроны могут возникать за счет различных процессов ионизации молекул MgO , O_2 , атомов Mg и щелочных металлов. Для выяснения эффективности последних измерены концентрации Na , K , Li в исследуемых частицах магния. Оказалось, что их общее содержание не превышает $2 \cdot 10^{-3}\%$. По уравнению Саха можно определить равновесную концентрацию электронов, связанную с ионизацией перечисленных выше атомов и молекул. Расчеты показали, что она меньше 10^{14} м^{-3} .

Концентрация электронов вблизи зоны конденсации определяется формулой

$$n_0 = Z(r_k - r_{ш})^2 / D_0 B. \quad (9)$$

Величину B можно оценить из уравнений (6). Для характерных значений $x = 0,1$ и $a = 0,5$ $B = 200$. Коэффициент амбиполярной диффузии связан с подвижностью положительно заряженных частиц b_+ соотношением [8]

$$D_0 = 2kT/e \cdot b_+. \quad (10)$$

Значения b_+ при комнатных температурах измерены в работе [8], и их легко можно пересчитать на температуры в зоне конденсации. Скорость образования электронов оценивается по известной начальной массе частицы магния ($m \approx 4 \cdot 10^{-6} \text{ кг}$) и времени ее горения ($t \sim 8 \text{ с}$). Считая, что половина массового потока из зоны химического реагирования идет на частицу [12], получаем $\frac{dm}{dt} \approx 0,25 \cdot 10^{-6} \text{ кг/с}$. По размеру положительно заряженных частиц [5] и плотности окиси магния находим содержание магния в этих частицах ($m \approx 2 \cdot 10^{-19} \text{ кг}$), тогда в единицу времени создается $\frac{dN}{dt} \approx 10^{12} \text{ с}^{-1}$ частиц. Поскольку каждая положительно заряженная частица несет заряд $\sim 10e$ [8], то $Z \sim 10^{13} \text{ 1/с}$. Концентрация электронов в зоне конденсации с учетом ее объема [9] может достигать $\sim 10^{18} \text{ м}^{-3}$. Таким образом, термоэлектронная эмиссия — это процесс, определяющий образование электронов при горении одиночных частиц магния.

В работах [6, 7] указывается на существенную роль процессов химионизации при горении углеродсодержащих топлив. При горении одиночных частиц Mg она должна быть наиболее эффективной в области реагирования и максимум потенциала должен находиться в этой области пространства. Однако, как показали эксперименты, максимум потенциала находится в области конденсации. По-видимому, это может служить основанием не считать химионизацию определяющей при горении одиночных частиц Mg .

Влияние процессов рекомбинации на гибель заряженных частиц определяли следующим образом: частицу помещали под срез плоскопараллельного конденсатора, к которому подавали напряжение $\sim 2 \text{ кВ}$. Определяли расстояние, при котором конденсатор переставал регистрировать заряженные частицы. По этому расстоянию и по скорости конвективного потока оценено время жизни заряженных частиц $\sim 0,5 \text{ с}$, что в несколько раз превосходит характерное время амбиполярной диффузии.

Итак, в работе экспериментально и теоретически исследовано радиальное распределение электрического потенциала вокруг горящей одиночной частицы магния в диапазоне давлений 0,05—1 атм. Установлено наличие двух областей с различными механизмами формирования электрических полей. В области между «шубой» и частицей потенциал от-

рицателен и обусловлен термоэлектронной эмиссией с поверхности капли, дрейфовым и деформационным потоками электронов. В области между «шубой» и зоной конденсации потенциал положителен, имеет максимум в зоне конденсации и его распределение обуславливается амбиполярной диффузией заряженных частиц к поверхности «шубы» и термоэлектронной эмиссией с конденсированных частиц MgO . Установлено, что основные механизмы с изменением давления не меняются, максимум потенциала незначительно растет с уменьшением давления, а среднее значение напряженности электрических полей во второй области уменьшается, как $p^{-1/3}$.

Поступила в редакцию 1/VIII 1984

ЛИТЕРАТУРА

1. Дж. Лаутон, Ф. Вайнберг. Электрические аспекты горения. М.: Энергия, 1978.
2. Л. А. Гусак, Е. С. Семенов. ФГВ, 1975, 11, 6.
3. Б. С. Фиалков, И. Д. Щербаков, В. Т. Плицын. ФГВ, 1978, 14, 3.
4. Н. И. Кидин, Г. М. Махвиладзе. ФГВ, 1976, 12, 6.
5. Б. С. Фиалков, А. Г. Захаров, В. Т. Плицын. Химия твердого топлива, 1979, 2.
6. Б. С. Фиалков, А. Г. Захаров. ТВТ, 1981, 19, 1.
7. Б. С. Фиалков, А. Г. Захаров и др. ФГВ, 1981, 17, 5.
8. А. В. Флорко, С. В. Козицкий и др. ФГВ, 1983, 19, 6.
9. А. В. Флорко, А. Н. Золотко и др. ФГВ, 1982, 18, 1.
10. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц. Электродинамика сплошных сред. М.: Наука, 1982.
11. В. Е. Голант, А. П. Жилинский, И. Е. Сахаров. Основы физики плазмы. М.: Атомиздат, 1977.
12. Л. А. Клячко. ФГВ, 1969, 5, 3.

РАСПРОСТРАНЕНИЕ ЗОНЫ ГОРЕНИЯ ПО ТУРБУЛЕНТНОЙ СРЕДЕ

П. В. Белоусов, И. Г. Дик
(Томск)

Режимы горения однородной смеси газов в условиях турбулентности отличаются большим разнообразием, обусловленным спецификой гидродинамики в том или ином техническом устройстве. В частности, большинство закономерностей горения в пограничном слое удается объяснить на основе модели, аналогичной описанию ламинарного горения с заменой молекулярных коэффициентов переноса на турбулентные [1—4]. Такого рода модели могут оказаться полезными и при развитии теории турбулентного горения по механизму движения искривленных участков ламинарного пламени, поскольку наличие в турбулентности высокочастотной составляющей пульсаций приводит к изменению скорости движения и структуры движущихся фронтов. Возможны и другие области применения так называемых моделей объемного горения газов [5].

Ниже в развитие работ [6, 7] горение предварительно перемешанных газов рассматривается в рамках модели, использующей уравнения для среднего значения температуры $\langle T \rangle$ и одноточечных вторых корреляционных моментов $\langle w'T' \rangle$ и $\langle T'^2 \rangle$.

Пусть безграничное однородное пространство заполнено реагирующим газом, находящимся в турбулентном состоянии. Гидродинамические характеристики турбулентности (среднеквадратичная скорость пульсаций $b = \sqrt{\langle w'^2 \rangle}$ и лагранжев масштаб L) считаются заданными. В этом пространстве распространяется плоский слой, где происходит превращение исходного вещества в продукты химической реакции. Предполагается, что химическая реакция экзотермическая с достаточно